

Degradasi Lapisan Aluminida pada Paduan Intermetalik α_2 -Ti₃Al / γ -TiAl Akibat Oksidasi Siklik

Toto Saputra dan Adi Ganda Putra

Teknik Mesin Fakultas Teknik Universitas Jenderal Acmad Yani, Bandung

Email: azizanggun@yahoo.com

ABSTRAK

Paduan intermetalik dua fasa α_2 -Ti₃Al/ γ -TiAl dikembangkan untuk operasi temperature tinggi dalam lingkungan oksidatif. Namun laju oksidasinya tidak dapat ditolelir karena akan teroksidasi membentuk kerak oksida TiO₂ yang tidak protektif. Pada Mesin turbin gas yang seringkali mengalami siklus thermal, dapat mengakibatkan peretakan (*cracking*) dan pengelupasan (*spalling*) kerak oksida. Coating merupakan solusi yang tepat agar paduan ini dapat digunakan pada temperature tinggi. Dengan memperkaya permukaan benda kerja dengan unsur Al sehingga material mampu membentuk kerak oksida protektif Al₂O₃ saat teroksidasi. Metoda pelapisan temperature tinggi yang sering diterapkan untuk keperluan ini adalah *pack cementation*. Studi ini membahas sebagian dari hasil pengujian oksidasi siklik. Khususnya pembahasan karakteristik coating dan kerak oksida yang terbentuk pada paduan intermetalik dua fasa α_2 -Ti₃Al/ γ -TiAl hasil *pack aluminizing*.

Kata kunci: *Coating, cyclic oxidation, pack aluminizing.*

ABSTRACT

Two-phase inter-metallic alloy α_2 -Ti₃Al / γ -TiAl is developed to operated at high temperature in oxidative environment. However its oxidation rate can not be tolerated due to formation of TiO₂ which is not protective. If the alloy is used in gas turbine that often have thermal cycle, it will cause cracking and flaking oxide crust. Coating is correct solution to improve properties of this alloy so that it can be used at high temperature. By enriching the material surface with significant amount of Al element there will be a formation of Al₂O₃ protective oxide. The method applied to get formation of Al₂O₃ is the pack cementation. This study discusses of characteristic coating and oxide crust formation at two-phase inter-metallic alloy of α_2 -Ti₃Al / γ -TiAl from pack aluminizing process

Keywords: *Coating, cyclic oxidation, pack aluminizing.*

PENDAHULUAN

Pemakaian material pada kondisi operasi dengan temperatur tinggi, dapat mencapai hingga 1100°C¹⁾. Saat digunakan material sering mengalami tegangan luar yang cukup besar secara berulang-ulang dan bersamaan dengan itu material berada dalam lingkungan korosif serta berinteraksi dengan partikel yang ada dalam fluida. Pada kondisi kerja tersebut, material harus memiliki sifat mekanik dan ketahanan korosi temperatur tinggi yang cukup baik, meliputi kekuatan pada suhu tinggi (*high temperature strength*), ketangguhan (*toughness*), ketahanan mulur (*creep resistance*), ketahanan lelah termal (*thermal fatigue resistance*) dan ketahanan oksidasi, sulfidasi serta *hot corrosion* [1].

Pengembangan paduan untuk komponen temperatur tinggi, seperti untuk sudu turbin (*turbine blade*) pesawat jet yang beroperasi pada lingkungan

oksidatif biasanya mengandung Al, Cr atau Si dengan konsentrasi yang cukup tinggi agar dapat membentuk lapisan protektif Al₂O₃, Cr₂O₃ atau SiO₂. Di antara ketiga jenis oksida tersebut, kerak oksida yang paling protektif dan stabil pada temperatur diatas 1000°C adalah Al₂O₃. Oksida SiO₂ dan Cr₂O₃ cenderung membentuk fasa yang mudah menguap pada suhu lebih dari 1000°C secara berurutan dalam lingkungan reduktif dan oksidatif, sehingga kerja mesin menjadi lebih efisien.

Pada dekade terakhir, pengembangan paduan untuk aplikasi temperatur tinggi dilakukan dengan membentuk paduan intermetalik. Di antara paduan intermetalik yang dikembangkan adalah paduan intermetalik dengan sistem Titanium-Aluminium (Ti-Al) yang dikenal mempunyai kekuatan dan tahan perayapan pada temperatur tinggi, serta memiliki densitas yang relatif rendah sehingga berpotensi untuk diaplikasikan dalam teknologi

pesawat terbang, teknologi antariksa maupun otomotif [2].

Paduan intermetalik dua fasa α_2 -Ti₃Al/ γ -TiAl diharapkan mampu dioperasikan pada temperatur tinggi dalam lingkungan oksidatif, karena paduan tersebut dapat membentuk kerak oksida protektif Al₂O₃ yang memiliki laju pertumbuhan oksida yang relatif lambat. Namun demikian pada temperatur di atas $\pm 950^\circ\text{C}$ pada semua selang komposisi γ -TiAl paduan intermetalik sistem Ti-Al akan teroksidasi membentuk kerak oksida TiO₂ yang memiliki laju oksidasi relatif cepat. Oleh sebab itu, agar komponen yang terbuat dari paduan intermetalik dua fasa α_2 -Ti₃Al/ γ -TiAl dapat diaplikasikan hingga temperatur di atas $\pm 950^\circ\text{C}$ maka pada permukaan paduan ini perlu diperkaya dengan unsur Al misalnya dengan membentuk lapisan TiAl₃. Lapisan ini diharapkan mampu membentuk kerak oksida protektif Al₂O₃ saat teroksidasi [3].

Pengkayaan Al pada paduan Ti-Al dapat dilakukan dengan proses *diffusion coating*. Proses ini menggunakan sumber pelapis Al melalui metoda *pack cementation* yang disebut *pack aluminizing*, hal ini dapat dipilih untuk meningkatkan kadar Al pada permukaan paduan dua fasa α_2 -Ti₃Al/ γ -TiAl agar sifat mekanik substrat tetap memadai pada temperatur tinggi. Dalam studi ini dipelajari perilaku oksidasi paduan intermetalik dua fasa α_2 -Ti₃Al/ γ -TiAl yang telah dilapis akibat oksidasi siklik pada 1100°C . Lapisan TiAl₃ dibentuk dengan *pack aluminizing* dengan aktivitas Al tinggi [6]. Lapisan ini merupakan salah satu lapisan yang dihasilkan dari beberapa jenis pelapis yang dikembangkan dalam studi ini di laboratorium Elektometalurgi dan Korosi, Departemen Teknik Pertambangan ITB.

METODE PENELITIAN

Substrat yang digunakan dalam penelitian ini adalah paduan intermetalik dua fasa α_2 -Ti₃Al / γ -TiAl dengan komposisi 42,5 % atom Al dan 57,5 % atom Ti. Proses *pack aluminizing* dilakukan pada temperatur dan waktu yang tetap yaitu pada 900°C selama 10 jam. Komposisi pack yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari sumber pelapis Al sebanyak 20 %, aktivator NH₄Cl sebanyak 2 % dan sisanya adalah pengisi inert (*inert filler*) Al₂O₃.

Pembuatan substrat

Paduan α_2 -Ti₃Al/ γ -TiAl merupakan paduan biner Ti-Al yang mengandung dua fasa α_2 -Ti₃Al dan γ -TiAl, yang dihasilkan dari campuran kimia dengan komposisi 42,5% atom Al and 57,5% atom Ti. Peleburan paduan dilakukan dalam *electric arc furnace* dengan atmosfer gas argon kemurnian tinggi (*atmosphere with high purity argon*). Untuk mendapatkan paduan dengan tingkat homogenitas

tinggi dan menghilangkan tegangan sisa yang tersimpan dalam paduan hasil peleburan, maka dilakukan proses homogenisasi dengan memanaskan hasil peleburan pada temperature 1100°C selama 24 jam dalam tanur tabung horizontal yang dialiri argon. Paduan yang berbentuk lempeng tersebut dipotong-potong, untuk mendapatkan sample dengan ukuran $\pm 8\text{mm} \times 5\text{mm} \times 2\text{mm}$. Permukaan sample kemudian dihaluskan dan dicuci dengan *ultrasonic cleaner*. Potongan sample ini kemudian digunakan sebagai substrat untuk proses *pack aluminizing*.

Proses pack aluminizing

Pelapisan dilakukan dengan proses *pack aluminizing* aktivitas Al tinggi. *Pack* yang disiapkan merupakan campuran dari Aluminium, NH₄Cl dan Al₂O₃ serbuk. Komposisi *pack* dicantumkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Komposisi Pack dalam Proses Pack Aluminizing

Material	Fungsi	% berat
Aluminium	Sumber pelapis	20
NH ₄ Cl	Aktivator	2
Al ₂ O ₃	Inert filler	78

Serbuk *pack* yang diperoleh kemudian dihomogenisasi dengan cara mengaduk campuran komposisi *pack* tersebut hingga homogen dalam kotak atmosfer argon. Serbuk *pack* yang telah homogen tersebut kemudian dipindahkan ke dalam *retort* alumina (masih didalam kotak atmosfer argon) kemudian sampel dimasukkan dan *retort* ditutup dengan semen alumina. Proses *pack aluminizing* dilakukan dengan cara memanaskan *retort* yang telah tertutup didalam tanur yang dialiri gas argon pada temperatur 900°C selama 10 jam, dilanjutkan proses pendinginan dalam tanur sampai mencapai temperatur kamar. Selama pemanasan dan pendinginan dalam tanur argon tetap dialirkan sampai temperatur kurang dari 50°C kemudian dilakukan pembongkaran *retort* untuk mengeluarkan sampel hasil *pack aluminizing*. Sampel kemudian dibersihkan menggunakan *ultrasonic cleaner*.

Sampel hasil proses *pack aluminizing* tersebut di-*mounting* dengan resin kemudian dilakukan pengampelasan dan pemolesan sampai $1\ \mu\text{m}$ sebelum dietsa dengan campuran 10 ml HF, 5 ml HNO₃ dan 85 ml air. Observasi struktur mikro dilakukan dengan mikroskop optik dan *scanning electron microscope* (SEM). Identifikasi fasa diperoleh dengan analisis *x-ray diffraction* (XRD), sedangkan profil konsentrasi Al dan Ti diperoleh melalui *energy dispersive analysis of x-ray* (EDAX) yang terdapat pada SEM. Pengukuran ketebalan lapisan *coating* dilakukan dengan menggunakan

alat mikroskop optik yang terdapat pada *microhardness tester*.

Pengujian oksidasi siklik

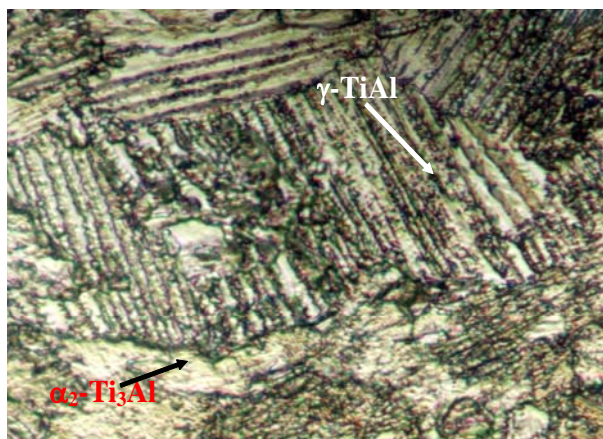
Pengujian oksidasi siklik dilakukan untuk mengetahui ketahanan sampel hasil proses *pack aluminizing* pada temperatur 1100°C dengan siklus 1 jam pemanasan didalam tungku dan 30 menit pendinginan udara. Pada pengujian ini digunakan dengan menggunakan tanur tabung vertikal, yang dialirkan udara dengan tekanan 1 atm secara natural.

Sampel hasil oksidasi setiap siklus ditimbang untuk mengetahui perubahan setelah oksidasi. Identifikasi fasa/senyawa yang terbentuk di permukaan hasil oksidasi siklik dilakukan dengan XRD. Observasi struktur mikro dilakukan dengan mikroskop optik dan SEM yang sebelumnya dilakukan pengampelasan dan pemolesan sampai 1 μm sebelum dietsa dengan campuran 10 ml HF, 5 ml HNO₃ dan 85 ml air. Profil konsentrasi dari permukaan coating hingga substrat diperoleh dari EDAX pada SEM.

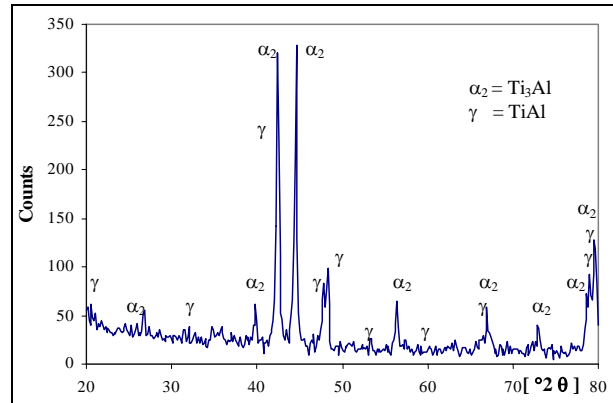
HASIL DAN PEMBAHASAN

Substrat

Gambar 1 memperlihatkan struktur mikro hasil paduan dengan komposisi 57,5 % atom Ti + 42,5 % atom Al yang dihasilkan setelah proses homogenisasi pada temperatur 1100°C selama 24 jam dalam lingkungan inert (*gas argon*). Terlihat bahwa struktur terdiri dari *platelike* $\alpha_2\text{-Ti}_3\text{Al}$ (terang) dan $\gamma\text{-TiAl}$ (gelap). Pada Gambar 2 diperlihatkan pola difraksi hasil XRD pada substrat, dimana puncak dari pola difraksi dimiliki oleh pola α_2 dan γ yang mengindikasikan bahwa substrat merupakan paduan intermetalik yang terdiri dari dua fasa yaitu $\alpha_2\text{-Ti}_3\text{Al}$ + $\gamma\text{-TiAl}$.



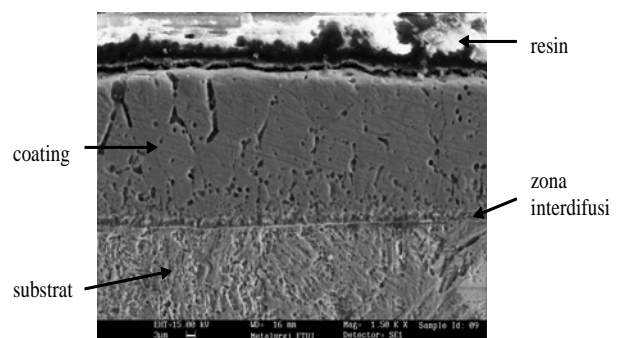
Gambar 1. Struktur Mikro Substrat Paduan Ti - 42,5 Al



Gambar 2. Hasil XRD pada Substrat Paduan Ti - 42,5 Al

Pelapisan (Coating)

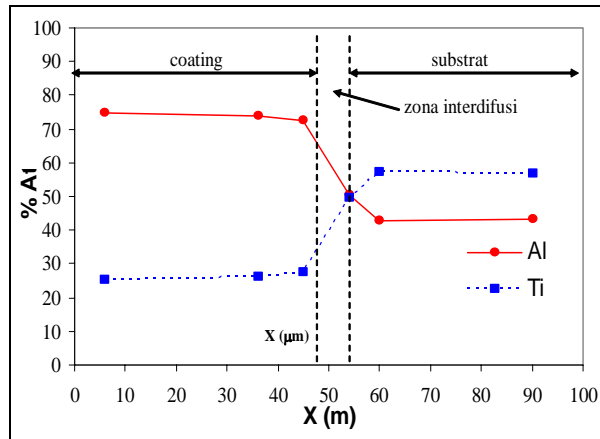
Pada proses *pack aluminizing* dengan komposisi pack (Tabel 1) pada temperatur 900°C selama 10 jam diperoleh perubahan berat sampel dan ketebalan lapisan coating yang terbentuk, yaitu : berat Al yang mengendap sebesar 12,2 mg, berat Al yang mengendap persatuan luas sebesar 8,47 mg/cm² dan tebal coating yang terbentuk sebesar 48,66 μm . Pada Gambar 3 ditunjukkan struktur mikro lapisan hasil proses *pack aluminizing*. Terlihat bahwa coating yang terbentuk adalah satu lapisan yaitu lapisan TiAl₃ dengan tebal 48,66 μm . Garis tipis yang membatasi lapisan yang terbentuk dengan substrat merupakan zona interdifusi pada antarmuka lapisan dengan substrat. Profil konsentrasi unsur Al dan Ti sebagai fungsi kedalaman dari permukaan ke substrat hasil analisis EDAX untuk lapisan yang terbentuk diperlihatkan pada Gambar 4.



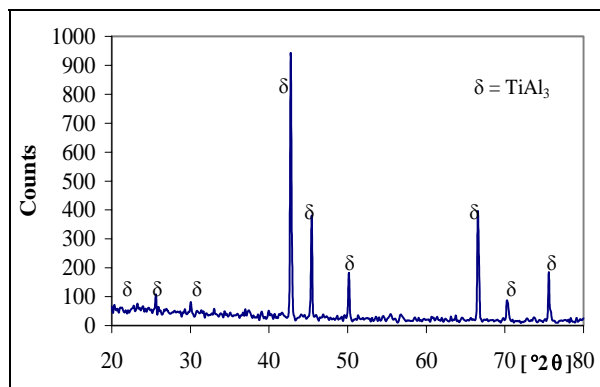
Gambar 3. Struktur Mikro Coating pada Substrat Paduan Ti - 42,5 Al Hasil Pack Aluminizing pada Temperatur 900°C Selama 10 Jam

Identifikasi fasa-fasa yang terbentuk pada sampel yang telah dicoating menggunakan XRD seperti ditunjukkan pada Gambar 5, memperlihatkan pola difraksi yang dimiliki oleh senyawa TiAl₃. Hal ini juga didukung oleh hasil analisis EDAX yang ditunjukkan pada Gambar 4 dimana diperoleh

gradien konsentrasi disepanjang lapisan coating dengan komposisi 72 – 75 % atom Al yang mengindikasikan bahwa lapisan coating tersebut merupakan senyawa $TiAl_3$. Senyawa $TiAl_3$ terbentuk apabila peningkatan kandungan Al yang terdeposisi pada permukaan substrat dan berakumulasi (berdifusi kedalam antarmuka substrat–ruah pack) hingga konsentrasinya dapat mencapai konsentrasi Al dalam $TiAl_3$.



Gambar 4. Profil Konsentrasi Lapisan Aluminida pada Substrat Paduan Ti-42,5 Al Hasil Pack Aluminizing pada Temperatur 900°C Selama 10 Jam



Gambar 5. Hasil XRD pada Substrat Paduan Ti - 42,5 Al Hasil Pack Aluminizing pada Temperatur 900°C Selama 10 Jam

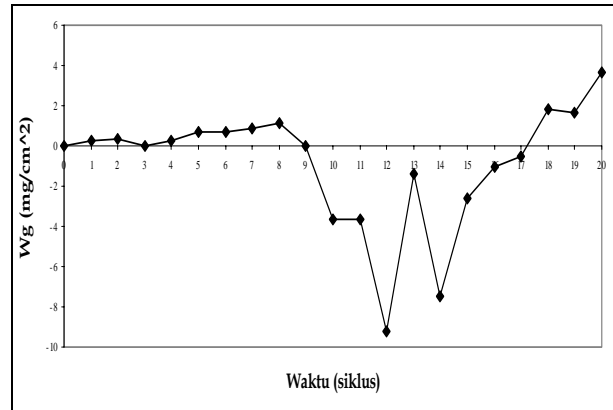
Oksidasi siklik

Pengujian oksidasi pada temperatur 1100°C dengan metoda siklik dilakukan terhadap sampel substrat yang telah dicoating. Dari hasil penimbangan berat sampel selama oksidasi, sebelum dan sesudah pemanasan diperoleh nilai perubahan berat yang secara grafis diperlihatkan pada Gambar 6.

Pada Gambar 6 diperlihatkan bahwa ada tiga bagian yang dapat dibedakan yaitu sampai siklus ke 8 oksida yang dominan terbentuk adalah Al_2O_3 , selanjutnya mulai siklus ke 8 sampai ke 17 terjadi pengelupasan oksida kerak Al_2O_3 , sedangkan siklus

ke 18 sampai ke 20 telah berlangsung pertumbuhan oksida TiO_2 yang dominan .

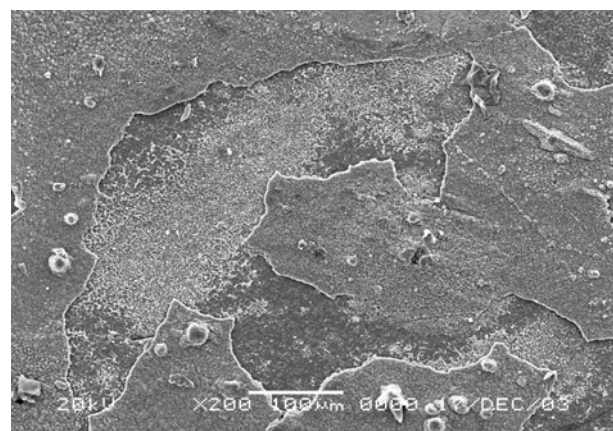
Photo struktur makro dan mikro permukaan sampel hasil oksidasi siklik pada siklus ke 2, 5, 8 dan 20 ditunjukkan pada Gambar 7, 8, 9 dan 10. Pengujian tersebut dilakukan dengan menggunakan 4 sampel yang dimasukkan secara bersamaan ke dalam tanur tabung.



Gambar 6. Hubungan Perubahan Berat Persatuan Luas terhadap Waktu (siklus) Hasil Oksidasi Siklik pada Temperatur 1100°C

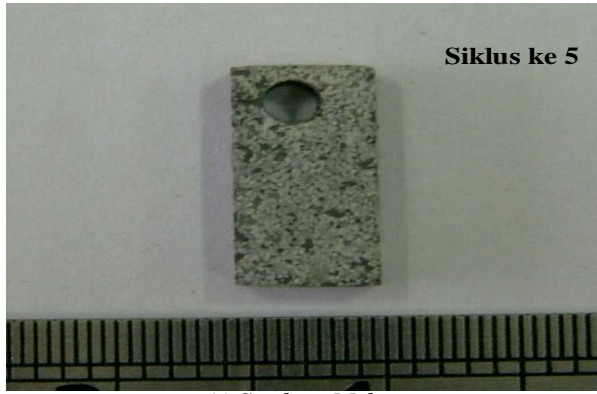


(a) Struktur Makro

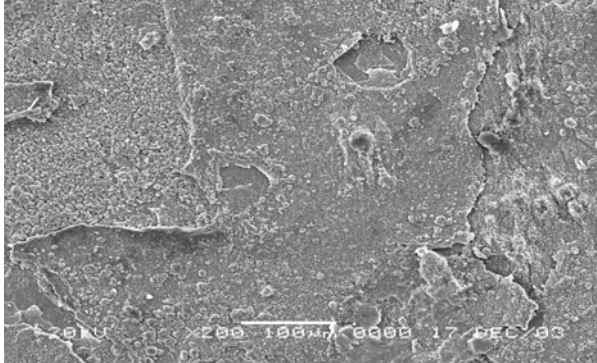


(b) Struktur Makro

Gambar 7. Permukaan Sampel Hasil Oksidasi Secara Siklik pada Siklus Ke 2

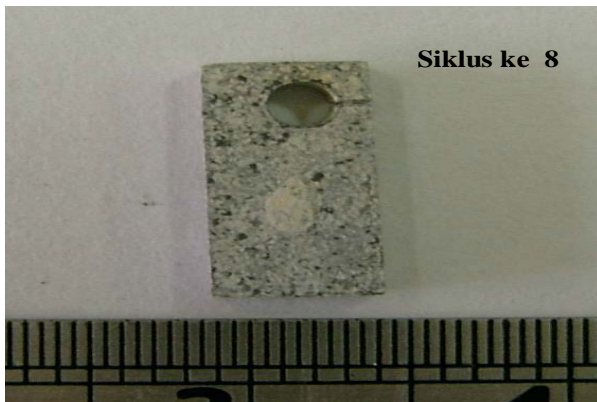


(a) Struktur Makro

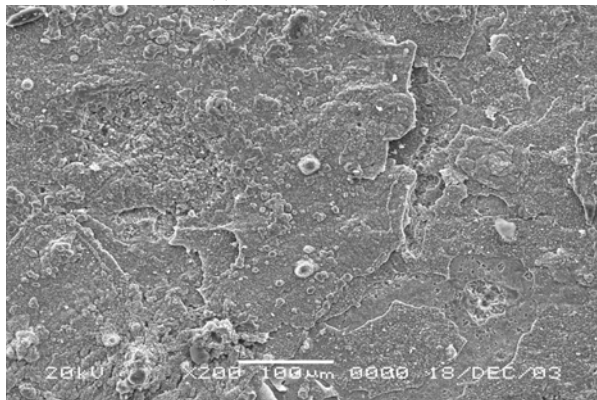


(b) Struktur Mikro

Gambar 8. Permukaan Sampel Hasil Oksidasi Secara Siklik pada Siklus ke 5



(a) Struktur Makro

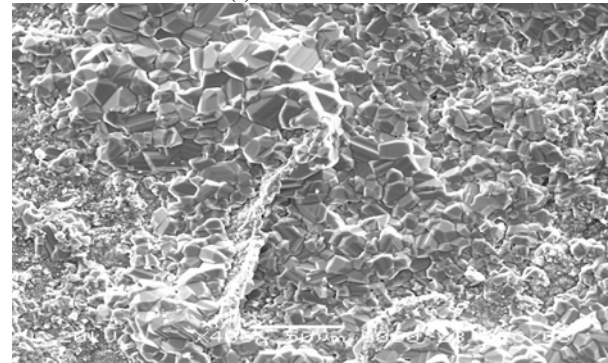


(b) Struktur Mikro

Gambar 9. Permukaan Sampel Hasil Oksidasi Secara Siklik pada Siklus ke 8



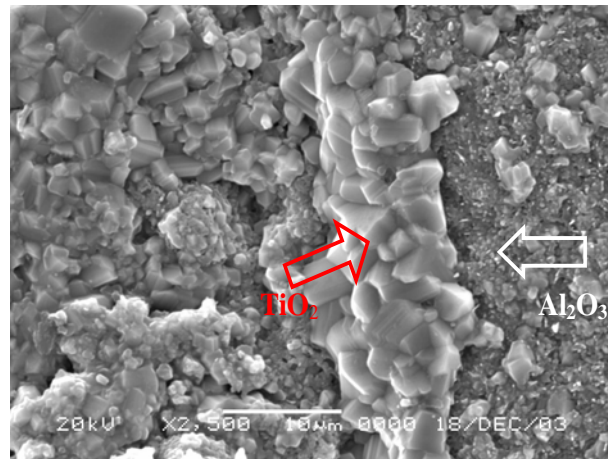
(a) Struktur Makro



(b) Struktur Mikro

Gambar 10. Permukaan Sampel Hasil Oksidasi Secara Siklik pada Siklus ke 20

Gambar 11 memperlihatkan salah satu contoh struktur oksida pada sampel hasil oksidasi siklik pada siklus ke 20 dimana oksida yang terbentuk adalah rutile (TiO_2) dan corundum (Al_2O_3).



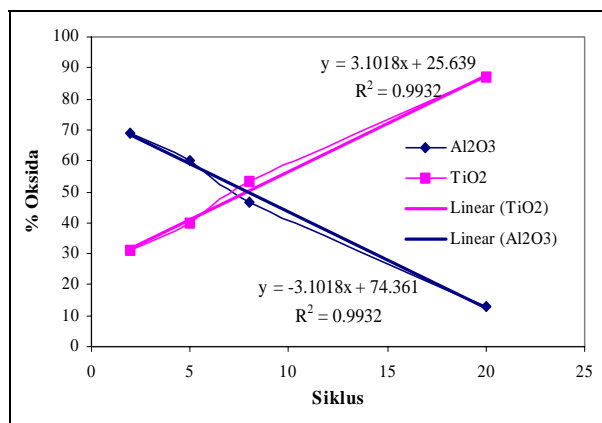
Gambar 11. Struktur Oksida TiO_2 dan Al_2O_3

Dari Gambar 7, 8, 9, dan 10 secara keseluruhan dapat dibandingkan pada setiap sampel dengan siklus yang berbeda terlihat pembentukan oksida yang semakin tebal dengan semakin tingginya siklus. Komposisi oksida hasil *spot area analysis* EDAX dari beberapa siklus ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Komposisi Oksida pada Permukaan Sampel dari Beberapa Siklus

Siklus	% Oksida	
Ke	Al ₂ O ₃	TiO ₂
2	68,94	31,06
5	60,31	39,69
8	46,55	53,45
20	13,08	86,92

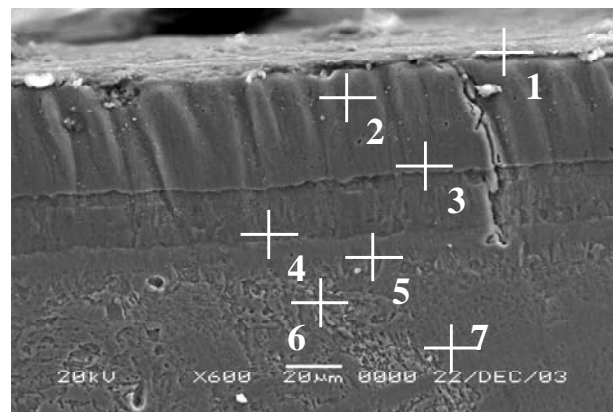
Proses oksidasi siklik menyebabkan sampel mengalami siklus termal yang akan mengakibatkan terjadinya retakan (*cracking*) dan pengelupasan (*spalling*) kerak oksida. Pembentukan kerak oksida protektif Al₂O₃ akan terus berlanjut hingga kemampuan *coating* untuk memasok Al ke permukaan sampel menurun sampai batas kelarutan minimum untuk membentuk kerak Al₂O₃ protektif. Pada saat *coating* tidak mampu membentuk kerak oksida Al₂O₃ yang dominan, maka *coating* dianggap sudah terdegradasi. Pada Gambar 6 diperlihatkan sampel stabil (tanpa terjadi penurunan berat) sampai siklus ke 8 karena masih tingginya kadar Al didalam *coating* (>50%) sehingga pasokan Al ke permukaan masih cukup untuk membentuk kerak Al₂O₃ protektif. Pada siklus selanjutnya mengalami *oxide scale breakdown* dan penurunan berat secara fluktuatif yang disebabkan terjadinya pengelupasan dan penebalan kerak oksida sampai siklus ke 17. Mulai siklus ke 18 terjadi peningkatan berat sampel yang diakibatkan penebalan kerak oksida, tetapi oksida yang terbentuk adalah oksida TiO₂ yang tidak protektif karena kadar Al didalam *coating* sudah berkurang. Pembentukan oksida hasil analisis EDAX pada Tabel 2, secara grafis diperlihatkan pada Gambar 12.



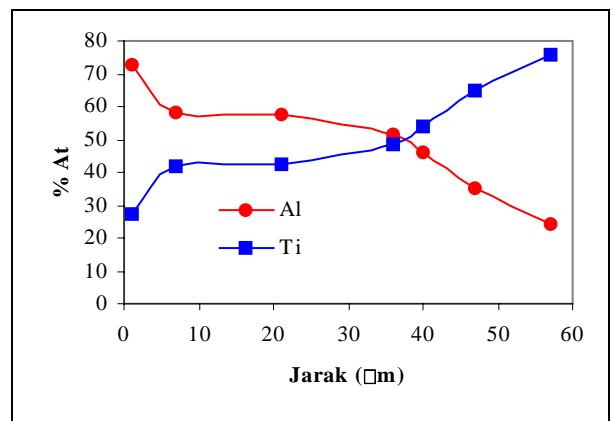
Gambar 12. Hubungan % Oksida pada Permukaan Sampel Terhadap Waktu (siklus) Hasil Oksidasi Siklik pada Temperatur 1100°C

Gambar 13, 14, 15 dan 16 memperlihatkan struktur mikro dan profil konsentrasi unsur Al dan Ti hasil SEM & EDAX sepanjang penampang melintang dari permukaan ke substrat pada sampel yang dilapis (*coating*) hasil oksidasi pada temperature 1100°C dengan berbagai waktu (siklus) secara berurutan pada siklus 2, 5, 8 dan 20. Terlihat bahwa

sampai siklus ke 8 masih terdapat lapisan *coating* (lapisan atas) yang mengindikasikan bahwa Al di dalam *coating* masih mampu membentuk kerak oksida protektif Al₂O₃. Sedangkan pada siklus ke 20 tidak lagi terlihat adanya lapisan *coating*, yang mengindikasikan kandungan Al yang ada tidak memenuhi batas kadar minimum untuk pembentukan kerak oksida protektif Al₂O₃. Profil konsentrasi hasil EDAX mendukung pernyataan yang memperlihatkan terjadinya penurunan unsur Al dengan bertambahnya jarak (kedalaman).

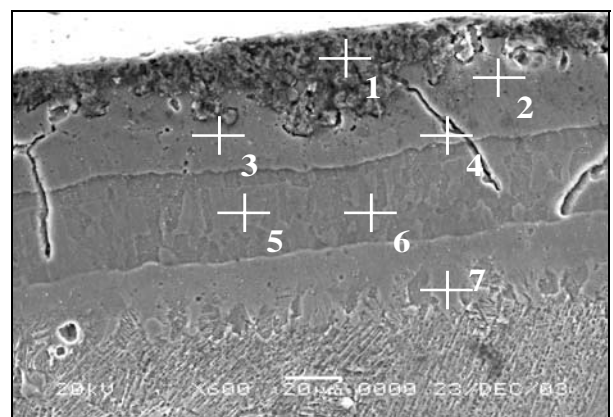


(a) Struktur Mikro

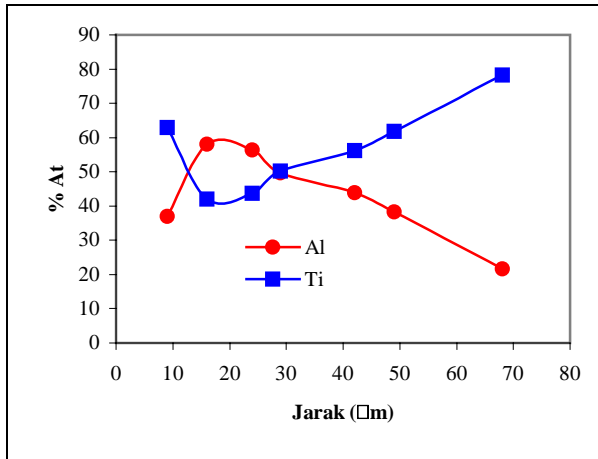


(b) Profil Konsentrasi Al dan Ti

Gambar 13. Penampang Sampel Dilapis Setelah Oksidasi Siklik pada Siklus ke 2

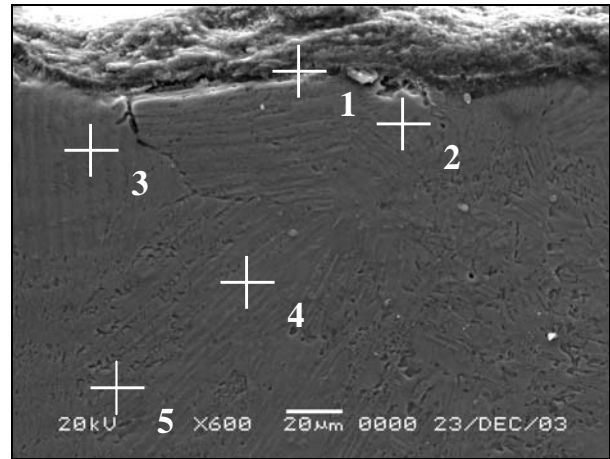


(a) Struktur Mikro



(b) Profil Konsentrasi Al dan Ti

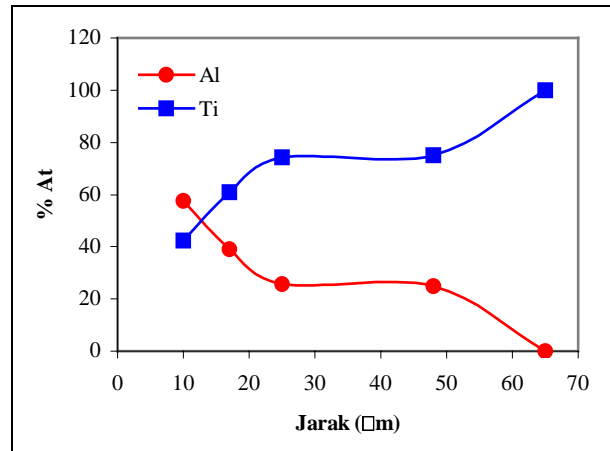
Gambar 14. Penampang Sampel Dilapis Setelah Oksidasi Siklik pada Siklus ke 5



(a) Struktur Mikro

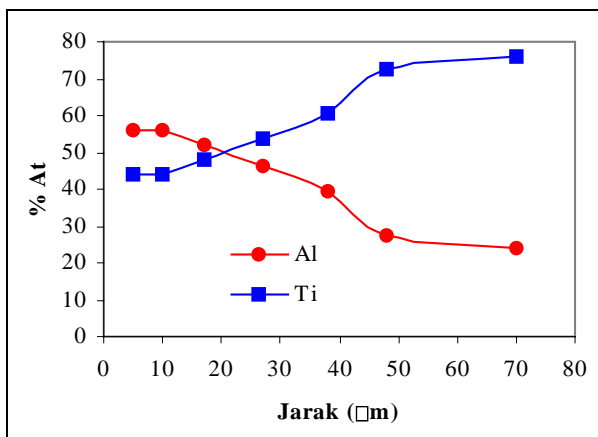


(a) Struktur Mukro



(b) Profil Konsentrasi Al dan Ti

Gambar 16. Penampang Sampel Dilapis Setelah Oksidasi Siklik pada Siklus ke 20



(b) Profil Konsentrasi Al dan Ti

Gambar 15. penampang Sampel Dilapis Setelah Oksidasi Siklik pada Siklus ke 8

KESIMPULAN

Dari hasil percobaan dan pembahasan dapat disimpulkan bahwa *coating* yang terbentuk hasil *pack aluminizing* terdiri dari lapisan $TiAl_3$ dengan ketebalan $48,66 \mu m$ dan lapisan tipis $2,45 \mu m$ $TiAl_2$. Hal ini mengindikasikan bahwa koefisien interdifusi $TiAl_3$ jauh lebih besar dari koefisien interdifusi $TiAl_2$. Kerak oksida yang terbentuk pada sampel yang telah dilapis (*coating*) saat oksidasi siklik pada temperatur $1100^\circ C$ adalah Al_2O_3 dan TiO_2 . Kerak oksida protektif Al_2O_3 stabil terbentuk sampai siklus ke 8, setelah siklus ke 8 sampel mengalami pengelupasan kerak oksida protektif Al_2O_3 yang ditandai dengan penurunan berat. Pembentukan dan pertumbuhan oksida TiO_2 semakin cepat dengan bertambahnya siklus pada temperatur $1100^\circ C$.

DAFTAR PUSTAKA

1. Van de Voorde, M.H., “*Protective Coating for Material in High Temperature Technology*”, dalam “*Surface Engineering, Surface Modification of Materials*”, editor R. Kossowsky dan Subhash C.S., Nijkoff Publisher, Boston, 1984.
2. Polmear, I.J., “*Recent Development in Light Alloys*”, Material Transaction, JIM Vol. 37, 1996.
3. Munro, T.C., “*The Deposition of Aluminide and Silicide Coatings on γ -TiAl Using The Halide Activated Pack Cementation Method*”, B.Sc. Thesis, School of Materials Science and Engineering UNSW, 1995.
4. Grisaffe, S.J., “*Coating and Protection*”, dalam The Superalloys, John Wiley and Sons Inc., 1972.
5. Mevrel, M., Duret, C. and Pichoir, R., “*Pack Cementation Process*”, The Institute of Metal, Chatillon, France, 1996.
6. Brady, M.P., et al, “*The Oxidation and Protection of Gamma Titanium Aluminides*”, JOM, November 1996.